

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-021419

(43)Date of publication of application : 21.01.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 10-183757

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 30.06.1998

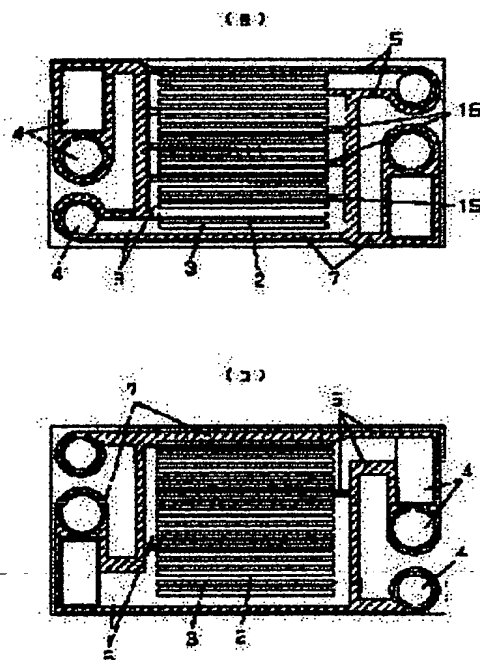
(72)Inventor : NISHIDA KAZUFUMI
 YASUMOTO EIICHI
 GYOTEN HISAAKI
 HADO KAZUHITO
 UCHIDA MAKOTO
 OBARA HIDEO
 SUGAWARA YASUSHI
 KANBARA TERUHISA
 MATSUMOTO TOSHIHIRO

(54) SOLID HIGH POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To reduce a cost at mass production time, and to reduce the size by providing a pair of electrodes for sandwiching a solid high polymer electrolyte film and a supply/discharge means of fuel gas, constituting a conductive separator between laminated cells out of metal having a carbon conductive layer on the surface, and connecting the gas flowing hole to the fuel gas supply/discharge means by a gas sealing material.

SOLUTION: A conductive separator is preferably formed by rolling of a roller after applying/drying a conductive agent is mainly composed of graphite and carbon black to/on a spongy nickel which porous body. A phenol groove 6 is formed of the phenol projecting surface 5 up to a wavy gas flowing groove by press working from a manifold hole 4 on hydrogen side and air side separators. An electrode/electrolyte jointing body having positive/negative electrode catalyst layers jointed to both surfaces of a proton conductive high polymer electrolyte film, is sandwiched by two kinds of separators and a phenol-made gasket 7. This separator is chemically inactive to an acidic atmosphere and can be thinned and cutting work can be obviated.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-21419
(P2000-21419A)

(43) 公開日 平成12年1月21日 (2000.1.21)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M	B 5 H 0 2 6
	8/10		R
		8/10	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平10-183757

(22) 出願日 平成10年6月30日 (1998.6.30)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 西田 和史

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 安本 栄一

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74) 代理人 100078204

弁理士 滝本 智之 (外1名)

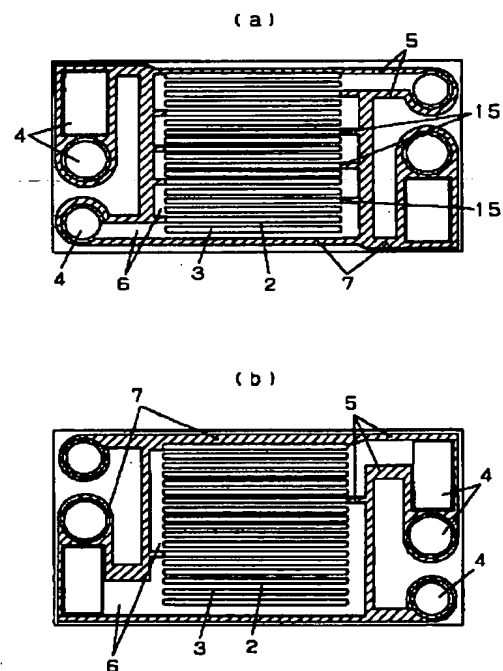
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 固体高分子型の燃料電池の構成要素であるセパレーター板は、従来、カーボン板を用い、この表面部分を切削加工して、ガス流通路を形成していた。この方法では、カーボン板の材料コストと共に、これを切削するためのコストを引き下げることが困難であった。これに替わり、金属を用いる方法が考えられるが、金属を用いる方法では、金属が高温で酸化性の雰囲気曝されるため、長期間使用すると、金属の腐食や溶解が起こり、電池の発電効率が次第に低下するという課題があった。

【解決手段】 セパレーターを構成する金属薄板上で、電極が位置する主要部にプレス成形などによってガス流路を形成し、この表面部分に炭素系導電層を有する層を形成する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 固体高分子電解質膜を挟む一对の電極と、前記電極に燃料ガスを供給排出する手段とを具備した単電池とを、導電性セパレータを介して積層した固体高分子電解質型燃料電池において、前記導電性セパレータは表面に炭素系導電層を有する金属よりなり、かつ前記導電性セパレータは前記燃料ガスを流通するガス流通溝を形成し、さらに前記燃料ガスに対するガスシール性を有する材料により、前記ガス流通溝と前記燃料ガスを供給排出する手段とを接続したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項2】 金属が、スポンジ状であることを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項3】 黒鉛またはカーボンブラックを構成成分とする導電剤を金属に塗布、乾燥する工程と、ローラーを用いて前記導電剤が塗布された金属を圧延する工程を含む固体高分子電解質型燃料電池の製造方法。

【請求項4】 導電性セパレータに形成したガス流通溝は、互いに平行な複数の直線形状であることを特徴とする請求項1または2記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項5】 導電性セパレータの一方の面に形成したガス流通溝の凸部が、前記導電性セパレータの背面でガス流通溝の凹を形成していることを特徴とする請求項1または2記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネシステム等に使用する固体高分子電解質を用いた燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】固体高分子電解質を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する燃料ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。その構造は、まず、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層を形成する。次に、この触媒反応層の外面に、燃料ガスの通気性と、電子導電性を併せ持つ拡散層を形成し、この拡散層と触媒反応層とを合わせて電極とする。

【0003】次に、供給する燃料ガスが外にリークしたり、二種類の燃料ガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットを配置する。このシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立て、これを、MEA（電極電解質膜接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電気的に直列に接続するための導電性のセパレータ板を配置する。セパレータ板のMEAと接

触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する。ガス流路はセパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

【0004】この溝に燃料ガスを供給するためは、燃料ガスを供給する配管を、使用するセパレータの枚数に分歧し、その分歧先を直接セパレータ状の溝につなぎ込む配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のような燃料ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドを呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した孔を設け、ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接燃料ガスを供給するものである。

【0005】燃料電池は運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。通常、1～3セル毎に冷却水を流す冷却部をセパレータとセパレータとの間に挿入するが、セパレータの背面に冷却水流路を設けて冷却部とする場合が多い。これらのMEAとセパレータおよび冷却部を交互に重ねていき、10～200セル積層した後、集電板と絶縁板を介し、端板でこれを挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

【0006】このような固体高分子型の燃料電池では、セパレータは導電性が高く、かつ燃料ガスに対してガス気密性が高く、更に水素／酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持ち必要がある。このような理由で、従来のセパレータは通常グラッシーカーボンや膨張黒鉛などのカーボン材料で構成し、ガス流路もその表面での切削や、膨張黒鉛の場合は型による成型で作製していた。

【0007】しかしながら近年、従来より使用されたカーボン材料に代えて、ステンレスなどの金属を用いる試みが行われている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】従来のカーボン板の切削による方法では、カーボン板の材料コストと共に、これを切削するためのコストを引き下げることが困難であり、また膨張黒鉛を用いた方法も材料コストが高く、これが実用化の為の障害と考えられている。

【0009】また、上述の金属を用いる方法では、金属が高温で酸化性の雰囲気曝露されるため、長期間使用すると、金属の腐食や溶解が起こる。金属が腐食すると、腐食部分の電気抵抗が増大し、電池の出力が低下する。また、金属が溶解すると、溶解した金属イオンが高分子電解質に拡散し、これが高分子電解質のイオン交換サイトにトラップされ、結果的に高分子電解質自身のイオン電導性が低下する。これらの原因により、金属をそのま

3

ませバレータに使用し、電池を長期間運転すると、発電効率が次第に低下するという課題があった。

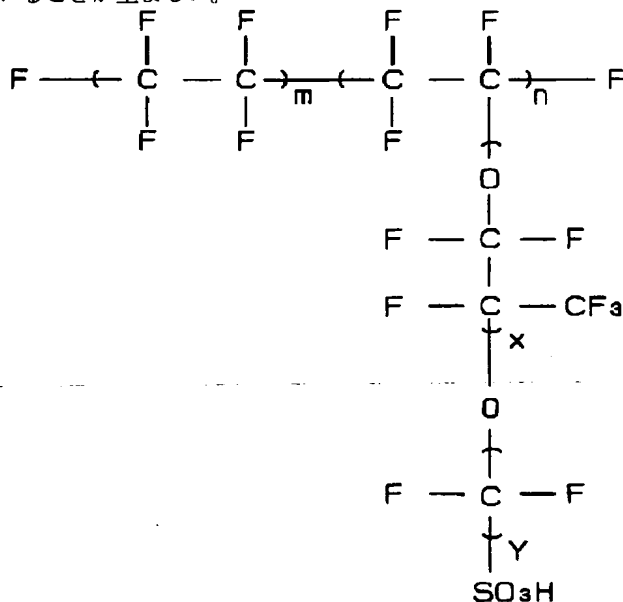
【0010】

【課題を解決するための手段】本発明のポイントは、金属を材料とする導電性セバレータの腐食と溶解を押さえ込むことで、導電性を有したまま、酸性雰囲気にも化学的不活性を維持させる方法を見出したことである。

【0011】即ち、本発明の固体高分子電解質型燃料電池は、固体高分子電解質膜を挟む一対の電極と、前記電極に燃料ガスを供給排出する手段とを具備した単電池とを、導電性セバレータを介して積層した固体高分子電解質型燃料電池において、前記導電性セバレータは表面に炭素系導電層を有する金属よりなり、かつ前記導電性セバレータは前記燃料ガスを流通するガス流通溝を形成し、さらに前記燃料ガスに対するガスシール性を有する材料により、前記ガス流通溝と前記燃料ガスを供給排出する手段とを接続したことを特徴とする。

【0012】さらに、導電性セバレータに形成したガス流通溝は、互いに平行な複数の直線形状であることが有効である。

【0013】また、導電性セバレータの一方の面に形成したガス流通溝の凸部が、前記導電性セバレータの背面でガス流通溝の凹を形成していることが望ましい。



但し、mとnは

m=5~13.5あたり n=1とした。

x=1

Y=2

【0018】これらの電極は、正極・負極共に同一構成とし、電極より一回り大きい面積を有するプロトン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合し

4

*【0014】以上で、黒鉛またはカーボンブラックを構成成分とする導電剤を金属に塗布、乾燥する工程と、ローラーを用いて前記導電剤が塗布された金属を圧延する工程を含む固体高分子電解質型燃料電池の製造方法が有効である。

【0015】

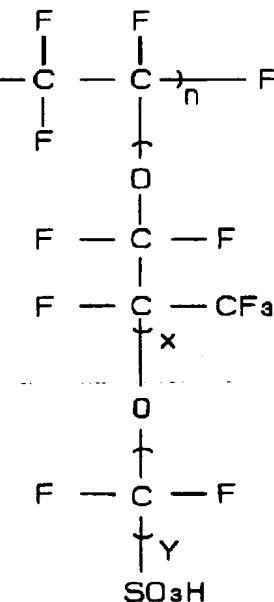
【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図面を参照しながら説明する。

【0016】

10 【実施例】（実施例1）アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約30の白金粒子を25重量%担持したものを反応電極の触媒とした。この触媒粉末をイソプロパノールに分散させた溶液に、（化1）で示したパーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールに分散したディスパージョン溶液を混合し、ペースト状にした。このペーストを原料としスクリーン印刷法をもちいて、厚み250μmのカーボン不織布の一方の面に電極触媒層を形成した。形成後の反応電極中に含まれる白金量は0.5mg/cm²、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は1.2mg/cm²となるよう調整した。

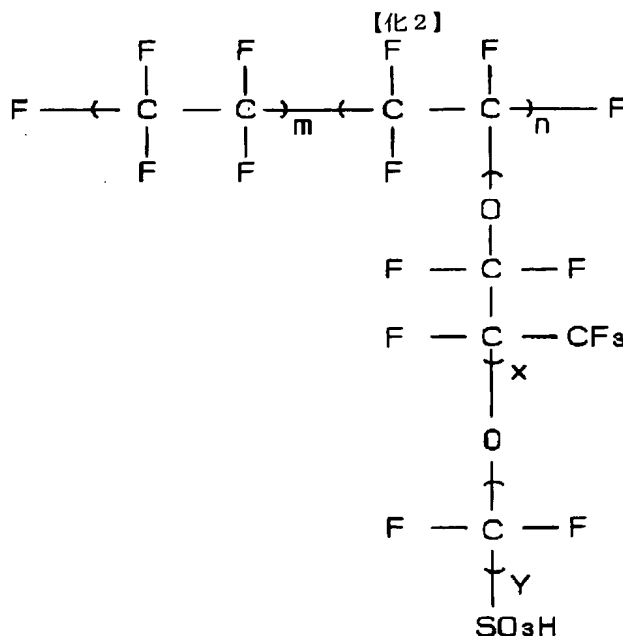
【0017】

【化1】



て、電極/電解質接合体(MEA)を作成した。ここでは、プロトン伝導性高分子電解質として、（化2）に示したパーフルオロカーボンスルホン酸を25μmの厚みに薄膜化したものを用いた。

【0019】



【0020】本実施例で作製した固体高分子電解質型燃料電池の各構成要素の構造を図1、図2、及び図3に示した。

【0021】まず、表面に炭素系導電層を有する金属よりなる導電性セパレータの作成方法を示す。縦20m、横50cm、厚み1.8mm、密度40~50g/m²の発泡ウレタン（有機高分子）の帯状有機高分子シートを用意し、先ずこの帯状有機高分子シートに対し電子導電性の付与を目的とし、シート1m²当たり約30gの炭素を塗布した。次に、長径と短径を有する略紡錘形の多数のウレタン構成単位（有機高分子単位）の大半を、長手方向と平行する方向に長径を有する形状にするべく、帯状有機高分子シートに対し長手方向から引っ張り力を加え、同時に幅方向から前記引っ張り力と同等以下の引っ張り力を加えた。更にこの状態で、帯状有機高分子シートをニッケルイオンを含む溶液に浸漬し、直流電流を通じてニッケルメッキを施した。ニッケルメッキした帯状有機高分子シートを、750℃で所定時間かけてばい焼し、有機物を消去した後、更に還元雰囲気中で焼結を行い、スポンジ状のニッケル多孔体（Ni基体）を作製した。このスポンジ状ニッケル基体の目付量（密度）は600g/m²であり、基体表面と略平行な格子線分の長径/短径比は1.3であった。

【0022】上記で作製した帯状のスポンジ状ニッケル基体にカーボンブラックを充填して導電性セパレータとなし、この導電性セパレータを用いて燃料電池を作製した。作製方法の詳細は、次の通りである。

【0023】カーボンブラックとポリテトラフルオロエチレンを重量比で3:7となるよう混合した。次いで、この混合物を10倍のカルボキシメチルセルロース水溶液に懸濁させて、導電ペーストとし、これをスポンジ状ニッケル基体に充填し乾燥した。次いで、ローラーを用いて、前記スポンジ状ニッケル基体を厚さ0.3mmに圧延した。この圧延したスポンジ状ニッケル基体の中央部10cm×9cmの領域に、5.6mmピッチ（溝幅約2.8mm）の波状加工部1を、プレス加工によって形成した。このとき溝2の深さ（山3の高さ）は約1mmとした。次に、図1に示したように、対抗する2辺にはそれぞれ水素ガス、冷却水、空気を供給・排出するためのマニホールド孔4を設けた。

【0024】つぎに、図2（a）に示したように、水素側となるセパレータには、マニホールド孔から金属板の加工によるガス流通溝まで、フェノール樹脂でできた凸部5によってガスを誘導する溝6を設けた。また、2個の溝が互いに隣り合い、湾曲してつながるようにフェノール樹脂でできた凸部5を重ねた。

【0025】このフェノール樹脂製の凸部は、厚みが約1mmでセパレータ板の溝の山の高さと同じとした。セパレータ板の外周部、マニホールド孔の周囲にも同様に形成し、金属板の形状に対応したガスケット7を構成している。

【0026】さらに、図2（b）に示したように、空気側となるセパレータは隣り合う6個の溝が、湾曲して連続したガス流通溝を形成するようにした。空気側と水素

7

ガス側で構造を変えているのは、空気側と水素ガス側とでガス流量が2.5倍程度異なるからである。逆に言えば、このような構造では、ガス流量に応じて樹脂製のガス流通溝の形状を変えることにより、最適なガス流速とガス圧損にする事が可能である。

【0027】 つぎに、図3に示したように、これら2種類のセパレータとガスケットにより、MEA8をはさみ電池の構成単位とした。図3で示したように、水素側のガス流通溝9と空気側のガス流通溝10の位置は対応するように構成し、電極に過剰なセンダン力がかからないようにした。単電池を2セル積層ごとに冷却水を流す冷却部11を設けた。冷却部にはSUS316製の金属メッシュ12を用いて導電性と冷却水の流通性を確保し、外周部とガスマニホルド部にフェノール樹脂製のガスケット7を設けることによってシール部とした。ガスケットとMEA、セパレータ板とセパレータ板、ガスケットとセパレータ板などのガスシールが必要な部分はグリス13を薄く塗布することによってあまり導電性を低下させずにシール性を確保した。

【0028】 以上示したMEAを50セルを積層した後、集電板と絶縁板を介し、ステンレス製の単板と締結ロッドで、 20 kgf/cm^2 の圧力で締結した。締結圧力は小さすぎるとガスがリークし、接触抵抗も大きいので電池性能が低くなるが、逆に大きすぎると電極が破損したり、セパレータ板が変形したりするのでガス流通溝の設計に応じて締結圧を変えることが重要であった。

【0029】 比較例の電池として、上記実施例の電池のように表面コートをしていないSUS316板により導電性セパレータを構成したものを作製した。比較例の電池で、導電性セパレータ以外は、全て上記実施例の構成と同一とした。

【0030】 このように作製した本実施例と比較例の高分子電解質型燃料電池を、85℃に保持し、一方の電極側に83℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、もう一方の電極側に78℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外に出しにくい無負荷時には、50Vの電池開放電圧を得た。

【0031】 この電池を燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度 0.5 A/cm^2 の条件で連続発電試験を行い、出力特性の時間変化を図5に示した。その結果、比較例の電池は駆動時間と共に出力が低下するのに比べ、本実施例の電池は、8000時間以上にわたって1000W(22V-45A)の電池出力を維持することを確認した。

【0032】 この実施例ではガス流通溝が複数の平行直線の場合を試みたが、図4のように2度の湾曲部14を経て、ガス供給マニホルドから、ガス排出マニホルド孔をガス流通溝でつなぐ構造や、巻き貝の殻のように中央部のマニホルド孔と外側のマニホルド孔とをガス流通溝でつなぐ構造など様々な構造も可能である。

8

【0033】 (実施例2) 実施例1では、金属の表面にカーボンブラックを導電剤とする炭素系導電層を形成した導電性セパレータを用いたが、本実施例では、黒鉛を導電剤とした例を示す。なお、本実施例では、導電層形成方法、電池構成、及び電池の特性評価条件は、全て実施例1と同一とした。

【0034】 電池特性は実施例1と同じく、燃料電池を85℃に保持し、一方の電極側に83℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、もう一方の電極側に78℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給し、燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度 0.5 A/cm^2 の条件で連続発電試験を行ったときの、初期と、運転時間が8000時間経過したときの電池出力を示した。その結果を図6に示した。その結果、比較例の電池は駆動時間と共に出力が低下するのに比べ、本実施例の電池は、8000時間以上にわたって1000W(22V-45A)の電池出力を維持することを確認した。

【0035】

【発明の効果】 本発明によると、セパレータ板として、従来のカーボン板の切削工法に替わり、ステンレスなどの金属材料を切削加工しないで用いることができるので、量産時に大幅なコスト低減が図れる。また、セパレータを一層薄くできるので積層電池のコンパクト化に寄与する。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の第1の実施例の燃料電池で用いた導電性セパレータの構成を示した図

【図2】 本発明の第1の実施例の燃料電池で用いた水素側セパレータの構成を示した図

【図3】 本発明の第1の実施例の燃料電池の積層電池の構成を示した図

【図4】 本発明の第1の実施例の燃料電池で用いることができる他の導電性セパレータの構成を示した図

【図5】 本発明の第1の実施例の燃料電池の出力特性を示した図

【図6】 本発明の第2の実施例の燃料電池の出力特性を示した図

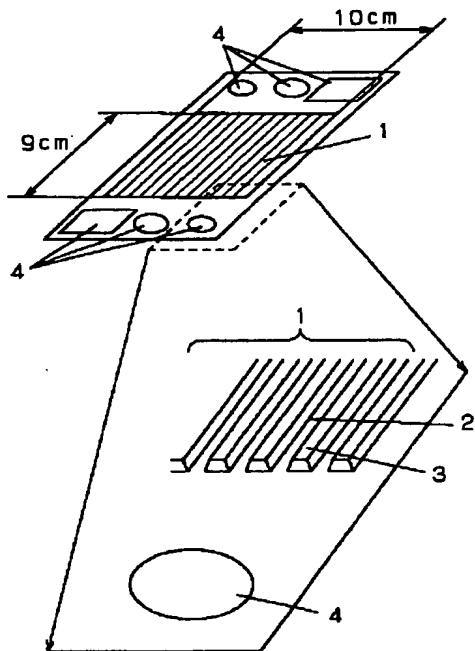
【符号の説明】

- 1 波状加工部
- 2 溝
- 3 山
- 4 マニホルド孔
- 5 フェノール製凸部
- 6 フェノール製の溝
- 7 フェノール製のガスケット
- 8 MEA
- 9 水素側のガス流通溝
- 10 空気側のガス流通溝
- 11 冷却部

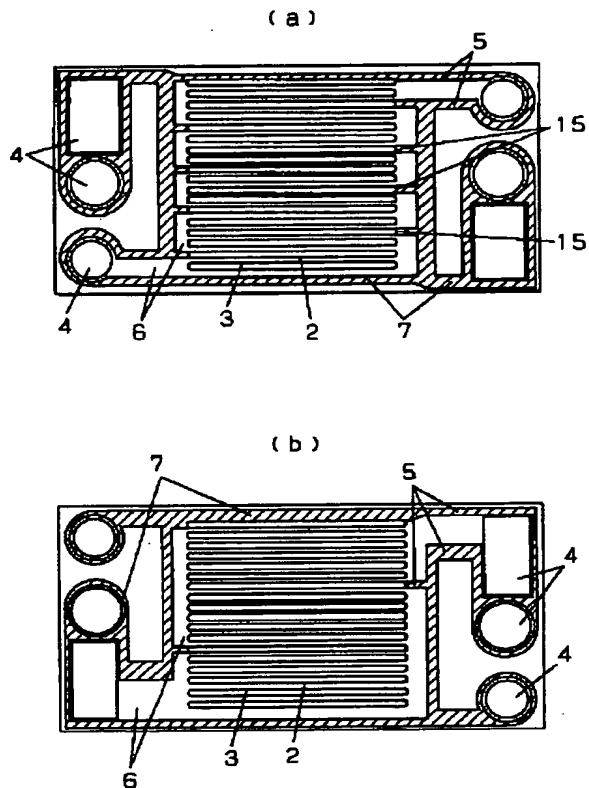
12 金属メッシュ

13 グリス

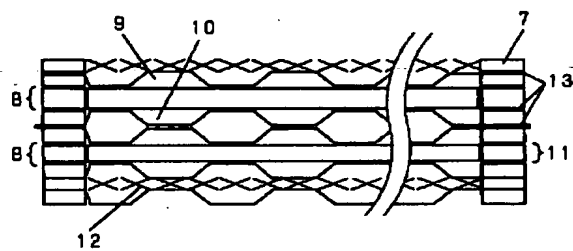
【図1】



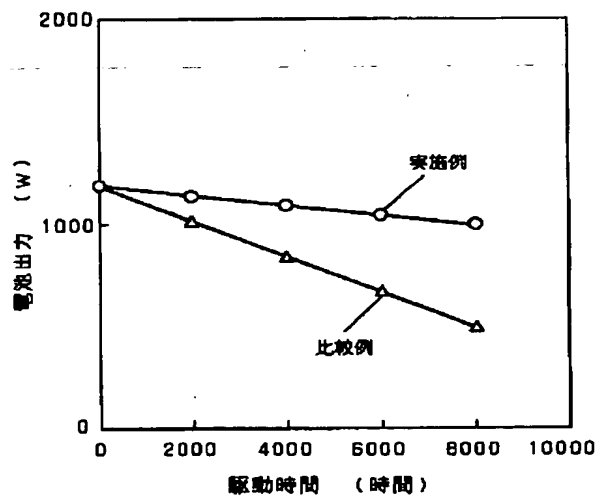
【図2】



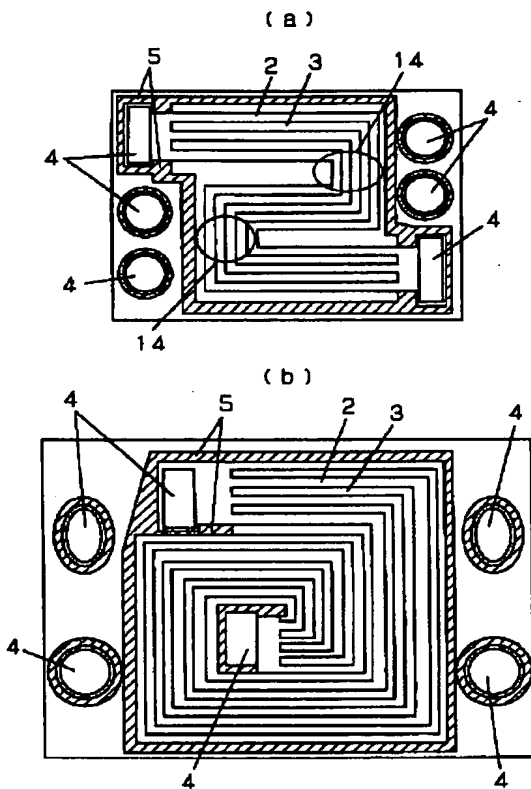
【図3】



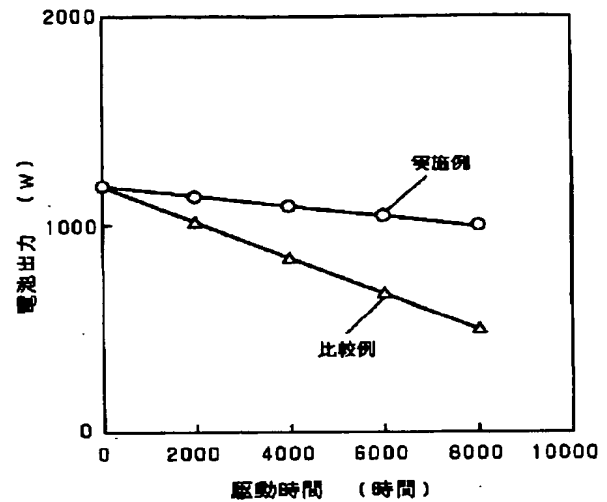
【図5】



【図4】



【図6】



フロントページの続き

(72)発明者 行天 久朗
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 羽藤 一仁
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 内田 誠
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 小原 英夫
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 菅原 靖
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 神原 輝壽
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 松本 敏宏
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA01 AA02 AA06 BB02 BB03
BB04 CC03 CX01 EE02 EE05